#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

## (43) 国際公開日 2003 年11 月27 日 (27.11.2003)

#### **PCT**

## (10) 国際公開番号 WO 03/098726 A1

(51) 国際特許分類7:

H01M 8/02, 8/10

(21) 国際出願番号:

PCT/JP03/05936

(22) 国際出願日:

2003年5月13日(13.05.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2002-140202

2002年5月15日(15.05.2002) JP

特願2002-227871

2002年8月5日 (05.08.2002) JP

(71) 出願人 *(*米国を除く全ての指定国について*)*: 大日本 印刷株式会社 (DAI NIPPON INSATSU KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀 町一丁目 1番 1号 Tokyo (JP).

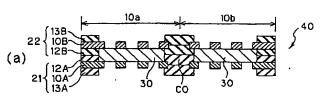
(72) 発明者; および

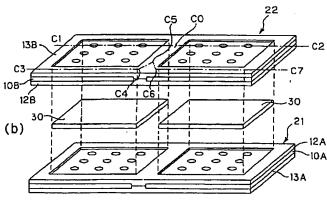
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 前田 高徳 (MAEDA,Takanori) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀町一丁目 1番1号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 八木裕 (YAGI,Hiroshi) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀町一丁目 1番1号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 太田 善紀 (OOTA, Yoshinori) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀町一丁目 1番1号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP).

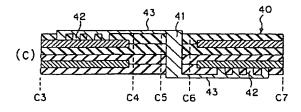
/続葉有/

(54) Title: SEPARATOR FOR FLAT TYPE POLYELECTROLYTE FUEL CELL AND POLYELECTROLYTE FUEL CELL EMPLOYING THAT SEPARATOR

(54) 発明の名称: 平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータおよび該セパレータを用いた高分子電解質型燃料電池







(57) Abstract: A separator for flat type polyelectrolyte fuel cell, and a polyelectrolyte fuel cell employing that separator. In recent years, the fuel cell has been required to be made as thin as possible and the separator has been required to be made as light as possible while ensuring the strength and to have a sealing function. The separator comprises a separator member coupling body having a metal plate as a basic body and formed by integrally coupling a plurality of separator members provided with a plurality of fuel supply trough holes arranged orthogonally to the surface of the basic body in association with unit cells, and a frame coupling body of insulating material formed by integrally coupling a plurality of frame parts for insulating the unit cells from each other and provided with a fuel supply opening corresponding to each separator member, wherein the frame coupling bodies are paired to clamp the separator member coupling body and each frame part of one frame coupling body can be fitted, in the opening thereof, with the composite membrane electrode of the fuel cell.

- (74) 代理人: 米田 潤三, 外(YONEDA, Junzo et al.); 〒 101-0043 東京都 千代田区 神田富山町 2 8 番地 2 松井ビル 4 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CA, CN, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FI).

添付公開書類: — 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

#### (57) 要約:

本発明は、平面型の高分子電解質型燃料電池用のtパレータおよび該t パレータを用いた高分子電解質型燃料電池に関する。

近年、上記燃料電池をできるだけ薄くすることが求められており、また、上記セパレータには、強度を確保した上での一層の軽量化、更には、シール機能を有することが求められている。

本発明では、上記セハ・レータを、金属板を基体とし、燃料供給用貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するように複数配列してといっていた。複数個一体的に連結してなるセハ・レータ部材を、複数個一体的に連結してなるセハ・レータ部材に対応した燃料等供給用の開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結してなる、絶縁材をおる枠連結体と、を有し、該枠連結体は、1対として前記セハ・レータ部材連結体を、その両面から挟持し、前記枠連結体の一方の各枠部は、その開口に燃料電池の膜電極複合体を嵌め込み可能なものとすること等によって、上記求めへの対応を図った。

## 明 細 書

# 平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータおよび 該セパレータを用いた高分子電解質型燃料電池

## 技術分野

本発明は、本発明は、燃料電池に関し、特に、平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータと、該セパレータを用いた高分子電解質型燃料電池に関する。

## 背景技術

燃料電池は、簡単には、外部より燃料(還元剤)と酸素または空気(酸化剤) を連続的に供給し、電気化学的に反応させて電気エネルギーを取り出す装置で、 その作動温度、使用燃料の種類、用途などで分類される。また、最近では、主に 使用される電解質の種類によって、大きく、固体酸化物型燃料電池、溶融炭酸塩 型燃料電池、りん酸型燃料電池、高分子電解質型燃料電池、アルカリ水溶液型燃 料電池の5種類に分類させるのが一般的である。

これらの燃料電池は、メタン等から生成された水素ガスを燃料とするものであるが、最近では、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型燃料電池(以下、DMFCとも言う)も知られている。

なかでも、固体高分子膜を2種類の電極で挟み込み、更に、これらの部材をセパレータで挟んだ構成の固体高分子型燃料電池(以下、PEFCとも言う)が注目されている。

このPEFCにおいては、固体高分子膜の両側に、それぞれ、電極を配置した単位セルを複数個積層し、その起電力を目的に応じて大きくした、スタック構造のものが一般的である。単位セル間に配設されるセパレータは、一般に、その一方の側面に、隣接する一方の単位セルに燃料ガスを供給するための燃料ガス供給用溝が形成されている。このようなセパレータでは、セパレータ面に沿って、燃料ガス、酸化剤ガスが供給される。

PEFCのセパレータとしては、グラファイト板を削り出して溝加工を施した

セパレータ、樹脂にカーボンを練り込んだカーボンコンパウンドのモールド性セパレータ、エッチングなどで溝加工を施した金属製セパレータ、金属材料の表面部を耐食性の樹脂で覆ったセパレータ等が知られている。これらのセパレータは、いずれも必要に応じて、燃料ガス供給用溝、及び/または、酸化剤ガス供給用溝が形成されている。

このスタック構造の燃料電池の他に、例えば、携帯端末用の燃料電池等のように、起電力をそれほど必要としないで、平面型で、できるだけ薄い事が要求される場合もある。しかし、平面状に単位セルを複数配列させ、これらを電気的に直列に接続する平面型の場合には、燃料及び酸素の供給が場所により不均一となるという問題もあった。

そこで、この燃料供給の不均一性を改善するために、膜電極複合体(MEA)に接しているセパレータの面に対して、垂直方向に多数の貫通孔を形成し、この 貫通孔から燃料及び酸素を供給する構造のセパレータが考えられている。

尚、ここでは、燃料電池の燃料供給側セパレータと酸素供給側のセパレータと の間に位置する電極部を含む複合体、例えば、順に、集電体層、燃料電極、高分 子電解質、酸素極、集電体層が積層されてなる膜等のような複合体を、膜電極複 合体(MEA)と言う。

しかし、上記のような構造のセパレータを、例えば、金属材料のみで形成した場合、強度を考慮してセパレータの厚みを厚くする必要があり、燃料電池の軽量化が困難となる。

上記のように、近年、燃料電池が広く使われる可能性が大きくなり、PEFCにおいては、平面型で、できるだけ薄い形態のものも要求されるようになってきた。しかし、セパレータについては、強度が十分で、一層の軽量化が求められており、更に、高分子電解質型燃料電池に供せられた際、セル内部の燃料、水分などが、燃料供給面以外からセル外部に出ることを防ぐ、シール機能を有するものが求められていた。

## 発明の開示

本発明は、これらに対応するもので、セパレータとして要求される強度を確保

 $\mathcal{A}$ 

し、更なる軽量化に対応できるセパレータを提供しようとするものであり、また、セパレータとして要求される強度の確保、更なる軽量化に加え、高分子電解質型燃料電池に供せられた際、セル内部の燃料、水分などが、燃料供給面以外からセル外部に出ることを防ぐ、シール機能を有するセパレータを提供しようとするものである。

同時に、このようなセパレータを用い、且つ、従来の両面プリント配線板の表 裏接続方法を活用して、簡便に単位セルを接続し、軽量化と強度の向上を可能と した高分子電解質型燃料電池を実現しようとするものである。

このような目的を達成するために、本発明は、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池用の、燃料供給側ないし酸素供給側のセパレータにおいて、金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するようにして複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結してなるセパレータ部材連結体と、各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結してなる、絶縁材からなる枠連結体と、を有し、該枠連結体は1対として前記セパレータ部材連結体を、その両面から挟持するものであり、且つ、前記セパレータ部材連結体の表裏の枠連結体の一方の各枠部は、その開口に燃料電池の膜電極複合体(MEA)を嵌め込み可能であるような構成とした。

また、本発明は、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池用の、燃料供給側ないし酸素供給側のセパレータにおいて、金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するようにして複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結してなるセパレータ部材連結体と、各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結してなる、絶縁材からなる枠連結体と、絶縁材からなるベタ状の板材、あるいは、絶縁材からなるベタ状の板材上に導電性層を積層した積層基材と、を有し、前記枠連結体と、ベタ状の板材あるいは積層基材とは、1対として前記セパレータ部材連結体を、その両面から挟持するものであり、且つ、前

 $\nabla_{\underline{a}}$ 

記枠連結体の各枠部は、その開口に燃料電池の膜電極複合体(MEA)を嵌め込み可能であるような構成とした。

尚、先にも述べた通り、本発明では、順に、集電体層、燃料電極、高分子電解質、酸素極、集電体層が積層された膜等のように、燃料電池の燃料供給側セパレータと酸素供給側のセパレータとの間に位置する電極部を含む複合体を、膜電極複合体(MEA)と言う。

上述の本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータは、このような構成にすることにより、セパレータとして要求される強度を確保し、一層の軽量化に対応できるセパレータの提供を可能とする。また、シール材を備えることにより、セパレータとして要求される強度の確保、一層の軽量化に加え、高分子電解質型燃料電池に供せられた際、各単位セル内部の燃料、水分などが、燃料供給面以外からセル外部に出ることを防ぐ、シール機能を有するセパレータの提供を可能としている。

また、本発明は、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池において、セパレータ部材連結体と、該セパレータ部材連結体を両面から挟持するように配設された1対の枠連結体と、を備える1組のセパレータが、燃料電池の膜電極複合体(MEA)を介して対向し、かつ、前記枠連結体の対向する面の開口に前記膜電極複合体(MEA)が嵌め込まれており、前記セパレータ部材連結体は、金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するようにして複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結したものであり、前記枠連結体は、各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の前記開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結した絶縁材からなるものであるような構成とした。

また、本発明は、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池において、セパレータ部材連結体と、該セパレータ部材連結体を挟持するように一方の面に配設された枠連結体と、他方の面に配設された絶縁材からなるベタ状の板材、あるいは、絶縁材からなるベタ状の板材上に導電性層を積層した積層基材と、を備える1組のセパレータが、燃料電池の膜電極複合体(MEA)を介

して対向し、かつ、前記枠連結体の開口に前記膜電極複合体(MEA)が嵌め込まれており、前記セパレータ部材連結体は、金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するようにして複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結したものであり、前記枠連結体は、各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の前記開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結した絶縁材からなるものであるような構成とした。

本発明の高分子電解質型燃料電池は、このような構成にすることにより、平面型のPEFCにおいて、従来の両面プリント配線板の表裏接続方法を活用して、 簡便に単位セルを接続し、軽量化と強度の向上の実現を可能としている。

## 図面の簡単な説明

図1(a)は、本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第1の例を示した平面図で、図1(b)は図1(a)におけるA1-A2断面図で、図1(c)は図1(a)におけるA3-A4-A5-A6における断面図である。

図2(a)は図1における枠連結体を図1(b)のA9側から見た平面図で、図2(b)は図1におけるセパレータ部材連結体を図1(b)のA9側から見た平面図で、図2(c)は図1における枠連結体を図1(b)のA9側から見た平面図である。

図 3 (a) はセパレータ部材連結体の 1 形態例を示した平面図で、図 3 (b) は図 3 (a) の B 1 - B 2 における断面図で、図 3 (c) は図 3 (a) の B 3 - B 4 における断面図である。

図4は本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態 の第2の例を示した断面図である。

図5(a)は本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第3の例を示した断面図で、図5(b)は第3の例の別の一断面図である。

図6 (a) は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の1例の断面図で

あって図 6 (b) に示す C 1 - C 2 断面における断面図であり、図 6 (c) は図 6 (a) に示すの高分子電解質型燃料電池の鳥瞰図で、図 6 (c) は図 6 (b) に示す C 3 - C 4 - C 5 - C 6 - C 7 断面における配線状態を示す断面図である。

図7は筐体を配設した状態を示した燃料電池の断面図である。

図8は図6に示す燃料電池の製造方法の工程図である。

図9(c)は図6に示す燃料電池の第1の変形例の断面図で、図9(a)~図9(c)は第1の変形例の燃料電池の製造工程図である。

図10(d)は図6に示す燃料電池の第2の変形例の断面図で、図10(a) ~図10(d)は第2の変形例の燃料電池の製造工程図である。

図11は図1(a)における各部材の位置を離して図示した図である。

図12は図4における各部材の位置を離して図示した図である。

図13(a)は、本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの 実施の形態の第4の例を示した平面図で、図13(b)は図13(a)における F1-F2断面図である。

図14は図13に示す第4の例のセパレータを用いた本発明の高分子電解質型 燃料電池の断面図である。

## 発明を実施するための最良の形態

次に、本発明の実施の形態について説明する。

図1~図14中、10はセパレータ部材連結体、10A、10Bはセパレータ部材連結体を各セル毎に分離した状態のもの(セパレータ群とも言う)、10a、10bはセパレータ部材、11はセパレータ部材連結体、11a、11bはセパレータ部材、12A、12B、13、13A、13Bは枠連結体、12aは枠部、12bは開口、12cは突起部、13aは枠部、13bは開口、13cは突起部、15は貫通孔、16はセル間分離用貫通孔、17は溝部、17aは燃料供給溝ないし酸素供給溝、18a、18bはシール材、20、21、22はセパレータ、20a、21a、22aはセパレータ、30は膜電極複合体(MEA)、40は燃料電池、41、42は充填ビア部、41aはスルホール(セパレータ間接続用のスルホール)、42bはスルホール(配線ーセパレータ間接続用のスルホ

.`~

ール)、43、43aは配線、45、45Aは貫通孔、46、46Aは孔部、50は筐体、61は銅箔、61aは配線、62、63はバンプ、65は銅箔、70はめっき部、110はセパレータ部材連結体、112、112A、112Bはベタ状の板材、112cは突起部、113aは枠部、113bは開口、113、113A, 113Bは枠連結体、115は貫通孔、120、121、122、125、126、127はセパレータ、130は導電性層(銅箔)である。

尚、図1 (a) 中、A0、図3中、B0は、それぞれ、は単位セル領域を示している。

また、図2、図11、図12中のA7、A8、図3中のB7、B8はつなぎ部 (連結部とも言う) である。

先ず、本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態 の第1の例を、図1、図2、図11に基づいて説明する。

第1の例のセパレータ20は、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池の燃料供給側ないし酸素供給側に配設されるセパレータである。 このセパレータ20は、燃料あるいは酸素がセパレータに直交する方向から供給 されるものであり、単位セルを2つ設けた燃料電池を作製するためのセパレータ である。

上記のセパレータ20は、金属板を基体としたセパレータ部材連結体10と、 このセパレータ部材連結体10の表裏の各面に、セパレータ部材連結体10を挟 持するように配設された枠連結体12,13とを有している。

セパレータ部材連結体10は、単位セルに対応したセパレータ部材を複数個、 図示例では2個のセパレータ部材10a,10bを一体的に連結したものである。 このセパレータ部材連結体10では、各単位セルに対応して、燃料電池の電解質 に燃料を供給するための貫通孔15が、その面に直交するようにして複数配列し て設けらている。

また、枠連結体12,13は絶縁材料からなるものであり、単位セル間を絶縁 するための枠部12a、13aを一体的に連結したものである。この枠連結体1 2,13は、各セパレータ部材10a,10bに対応するように、燃料供給用な いし酸素供給用の開口12b、13bを有している。 尚、枠連結体12の突起部12c(図2(a)参照)、枠連結体13の突起部13c(図2(c)参照)は、それぞれ、枠連結体12、セパレータ部材連結体10、枠連結体13を積層してセパレータ20を作製する際、セパレータ部材連結体10のセル間分離用貫通孔16に、嵌め込まれ互いに密着される。

また、セパレータ部材連結体10の表裏の各面に配設された枠連結体12、13の開口12b、13bのいずれか一方は、燃料電池の膜電極複合体(MEA)を嵌め込む形状を有するものである。

金属板を基体とするセパレータ部材連結体 1 0 は、少なくとも、基体の燃料電池の電解質側となる表面部には、耐食性(耐弱酸性)、電気導電性の樹脂層からなる保護層(図示していない)を配設してもよい。

セパレータ部材連結体10は、燃料使用に耐えるもので、耐食性(耐弱酸性)、 電気導電性を有し、所定の強度が得られればよく、特に限定されない。

セパレータ部材連結体10は、の金属基体を、機械加工、フォトリソグラフィー技術を用いたエッチング加工により、所定の形状に加工したものであり、本例では燃料供給用ないし酸素供給用の貫通孔15、セル間分離用貫通孔16を、これらの方法により形成したものである。

セル間分離用貫通孔16は、単位セル間にスリット状に設けられており、燃料電池作製の際には、つなぎの部分(図2(b)に示されるA7, A8に相当)を切り離す構造となっている。

本例のA7, A8部は、燃料電池作製の際には除去され、単位セル毎に、セパレータ部材連結体10の各セパレータ部材10a, 10bは分離される。

セパレータ部材連結体10に使用する金属基体の材質としては、電気導電性が 良く、所定の強度が得られ、加工性の良いものが好ましく、ステンレス、冷間圧 延鋼板、アルミニウム等が挙げられる。

また、金属基体の表面部への耐酸性かつ電気導電性を有する樹脂膜の配設方法 としては、樹脂にカーボン粒子、耐食性の金属等の導電材を混ぜた材料を用いて 電着により膜を形成し、加熱硬化する方法、あるいは、導電性高分子からなる樹 脂に導電性を高めるドーパントを含んだ状態の膜を電解重合により形成する方法 等が挙げられる。 .∀ -

本発明では、セパレータ部材連結体10の基体である金属板の表面には、金めっき等のめっき処理を施されて、セパレータ表面の導電性を損なうことなく、耐食性金属層を設けてもよい。

また、本発明では、セパレータ部材連結体10は、耐食性金属層上に、更に、 耐酸性かつ電気導電性を有する樹脂膜を配設した構造であってもよい。

尚、金めっき層等の耐食性の金属層を配設する方法としては、通常のめっき処理方法を用いることができ、ここでは詳細は省略する。

上述の電着は、電着性を有する各種アニオン性、またはカチオン性合成樹脂を、 樹脂膜を電着形成するための電着液として用い、且つ、電着液中に、導電材を分 散させた状態で、電着を行なう。

尚、電着により形成された樹脂膜の樹脂自体には導電性がないが、樹脂に導電 材が混ざった状態で膜形成されるため、樹脂膜としては導電性を示す。

用いられるアニオン性合成樹脂としては、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン化油樹脂、ポリブタジエン樹脂、エポキシ樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂等を単独で、あるいは、これらの樹脂の任意の組合せによる混合物として使用できる。

さらに、上記のアニオン性合成樹脂とメラミン樹脂、フエノール樹脂、ウレタン樹脂等の架橋性樹脂とを併用しても良い。

また、用いられるカチオン性合成樹脂としては、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、 ウレタン樹脂、ポリプタジエン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂等を単独 で、あるいは、これらの任意の組合せによる混合物として使用できる。さらに、 上記のカチオン性合成樹脂とポリエステル樹脂、ウレタン樹脂等の架橋性樹脂を 併用しても良い。

また、上記の樹脂に粘着性を付与するために、ロジン系、テルペン系、石油樹脂等の粘着性付与樹脂を必要に応じて添加することも可能である。

上記樹脂は、アルカリ性または酸性物質により中和して水に可溶化された状態、 または水分散状態で電着法に供される。 すなわち、アニオン性合成樹脂は、トリメチルアミン、 ジエチルアミン、 ジメチルエタノールアミン、 ジイソプロパノー ルアミン等のアミン類、アンモニア、 苛性カリ等の無機アルカリで中和する。 カ チオン性合成樹脂は、酢酸、ぎ酸、プロピオン酸、乳酸等の酸で中和する。そして、中和された水に可溶化された樹脂は、水分散型または溶解型として水に希釈された状態で使用される。

電着を用いた樹脂膜形成の場合、樹脂に混ぜる導電材としてカーボン粒子、耐食性の金属等が挙げられるが、耐酸性かつ電気導電性の樹脂層が得られれば、これらに限らない。

電解重合は、基本的には、芳香族化合物をモノマーとして含む電解液に電極を 浸漬して通電して行い、電気化学的に酸化又は還元して重合する方法で、広く知 られる方法で、ここではその詳細は省略する。

電解重合により、導電性高分子を直接フィルム状に合成することができるが、 本例においては、電解重合された樹脂中に導電性を高めるドーパントを含んだ状態としてある。

このような電解重合された樹脂中に、導電性を更に高めるドーパントを含んだ 状態とするには、電解重合の際にドーパントを含ませる電気化学的ドーピング、 あるいは、電解重合後、電解重合により形成された導電性樹脂(高分子)をドー パントの液体そのものに浸漬する、あるいはドーパント分子を含む溶液に浸す液 相ドーピング等の方法を用いることができる。

尚、このドーパントは、重合後に陰極と陽極を短絡したり、逆電圧を印加して 脱離又は中和することができ、更に電圧を制御して可逆的にドープ、脱ドープし てドーパント濃度を制御することも可能である。

電解重合を用いた樹脂膜形成に用いられるドーパントのうち、電子を与えるドナー型のドーパントとしては、アルカリ金属、アルキルアンモニウウムイオン等が挙げられる。また、電子を奪うアクセプタ型のドーパントとしては、ハロゲン類、ルイス酸、プロトン酸、遷移金属ハライド、有機酸が挙げられる。

セパレータ部材連結体 1 0 の表裏に配設される枠連結体 1 2、 1 3 の材質としては、絶縁性で、加工性が良く、軽く、機械的強度が大きいものが好ましい。このような材料としては、プリント配線基板用の基板材料等が用いられ、例えば、ガラスエポキシ、ポリイミド等が挙げられる。

所望の形状を有する枠連結体12、13の形成は、機械加工、レーザ加工等に

より行なうことができる。

本例のセパレータ20の作製方法としては、先に述べた方法等により個別に作製されたセパレータ部材連結体10と、枠連結体12、13とを、位置合せしながら圧着して作製する方法が挙げられる。

例えば、エポキシ樹脂などの接着剤を塗布し、各部を重ねあわせた状態で、接 着剤を硬化させ、固定する方法等がある。

この場合に用いられる接着剤は、その製造のプロセスにおいて他の部材に影響 を及ぼさず、かつ、燃料電池に供与された際、その動作条件に対する耐性が優れ たものであれば、特に限定はされない。

あるいは、枠連結体の一部あるいは全部を半硬化状態であるプリプレグにて形成し、圧着して、固定する方法もある。

尚、図1~図2に示すように、第1の例のセパレータ20は、単位セルを2つ 設けた燃料電池を作製するためのセパレータであるが、単位セルを3つ以上設け た燃料電池を作製するためのセパレータも同様である。

即ち、第1の例と同様のものとして、セパレータ部材(図1の10a、10b に相当)を増やし、第1の例と同様の構成で、単位セルを3つ以上設けた燃料電池を作製するためのセパレータが挙げられる。

第1の例のセパレータ20の変形例としては、セパレータ部材連結体10に代え、図3に示すように、貫通孔15に対して直交するように、ハーフエッチングにて形成されている溝部17を備えたセパレータ部材連結体11を用いたものが挙げられる。

この場合、燃料ないし酸素の供給は、セパレータ20に沿う方向から供給する もので、燃料供給溝ないし酸素供給溝17aから供給が行われる。

この変形例の場合も、B7, B8部は、燃料電池作製の際には、除去され、単位セル毎に、セパレータ部材連結体11の各セパレータ部材11a,11bは分離される。

また、更に上記実施の形態の第1例、変形例において、セパレータ部材連結体 を単位セル毎に分離した形態のものも挙げられる。

例えば、図1、図2のA7、A8を除去したもの、図3のB7、B8を除去し

たもの等である。

また、別の変形例として、セパレータ部材連結体 1 0 としては金めっき等の耐食性金属層を設けずに耐食性、電気導電性の樹脂皮膜層からなる保護層のみを設けたものも挙げられる。

また、本例では、枠連結体12に突起部12c、枠連結体13に突起部13cを設けているが、変形例として、これら突起部を設けないものとしてもよい。この場合、例えば、セパレータ部材連結体10のセル間分離用貫通孔16内に、これら枠連結体12、13と同じ材料で別体の部材を嵌め込み、この状態のセパレータ部材連結体10を、両面から枠連結体12,13で挟持することにより、セパレータ20が得られる。

次いで、本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第2の例を挙げる。

第2の例は、図1に示す実施の形態の第1の例において、燃料供給用側あるいは酸素供給用側の枠体連結体をベタ状に置き換えたものであり、その平面図は図1(a)と同様で、図1(a)のA3-A4-A5-A6に相当する断面は図1(c)と同様になり、図1(a)のA1-A2に相当する断面は図4のようになる。そして、図4における各部の位置を離して示した図が、図12である。

図4に示すように、第2の例のセパレータ120は、金属板を基体としたセパレータ部材連結体110と、このセパレータ部材連結体110の一方の面に配設された平板形状の板材112と、セパレータ部材連結体110の他方の面に配設された枠連結体113とを有している。

板材112は絶縁材料からなるものである。また、枠連結体113は絶縁材料からなるものであり、単位セル間を絶縁するための枠部を一体的に連結したものである。この枠連結体113は、各セパレータ部材に対応するように、燃料供給用ないし酸素供給用の開口を有している。

本例のセパレータ120が燃料電池に供される際に、ベタ状の板材112は、 燃料供給用ないし酸素供給用の開口を形成する加工がなされる。

枠連結体113、ベタ状の板材112については、第1の例の枠連結体12, 13と同様の材質が適用でき、セパレータ部材連結体110についても、第1の .∀

例のセパレータ部材連結体10と同様の材質が適用できる。

この第2の例の変形例も、上述の第1の例の変形例(図3参照)と同様のものが挙げられる。

次いで、本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第3の例を挙げる。

第3の例は、第2の例のセパレータのベタ状の板材上に更に銅箔等の導電性層を全面に配設したものである。その平面図は図1(a)と同様で、図1(a)のA1-A2に対応する断面は図5(a)のようになり、図1(a)のA3-A4-A5-A6に対応する断面は図5(b)のようになる。

図5に示すように、第3の例のセパレータ125は、金属板を基体としたセパレータ部材連結体110と、このセパレータ部材連結体110の一方の面に配設された枠連結体113と、セパレータ部材連結体110の他方の面に順に配設された平板形状の板材112と導電性層130からなる積層基材と、を有している。

本例のセパレータが燃料電池作製に供せらる際、導電性層130は、電気的接続を行なうためのもので、必要に応じ、除去される。また、ベタ状の板材112 は、第2の例と同様に、燃料供給用ないし酸素供給用の開口を形成する加工がなされる。

導電性層130としては、銅箔等が挙げられるがこれに限定はされない。

特に、ベタ状の板材112、導電性層130の組みの積層基材としては、片面 銅貼り基板等が挙げられる。

導電性層130以外の各部については、基本的に、第2の例と同様である。

この第3の例の変形例も、上述の第1の例の変形例(図3参照)と同様のものが挙げられる。

次いで、本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第4の例を挙げる。

第4の例の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ20aは、図1に示すセパレータ20にシール材を配設したものである。すなわち、図13に示すように、高分子電解質型燃料電池に供せられた際に、単位セルの気密性を高めるために、枠連結体、12、13の各開口12b、13bを囲むようにシール材1

8 a、18 bを設けている。

尚、シール材18bは、セパレータ20aを構成する各層間をシールするものであり、シール材18aは、燃料電池とした際のセパレータ20aどうしの間のシールを行なうものである。

第4例においては、シール材18a、18bは、枠連結体12、13に溝加工を施し、Oリングを嵌め込む方式のものである。Oリングとしては、燃料電池作動条件下での、ガスシール性、耐湿性、耐熱性、耐酸性、弾性などが十分なフッ素ゴムなどを用いる。

シール材18a、18bとして、枠連結体12、13にディスペンサーやスクリーン印刷により液状のシール剤を塗布して形成しても良い。この場合、例えば、液状のシール剤を溝加工部に塗布し、硬化させてシール材18a、18bを形成することができる。

液状シール剤は、特開2000-12054号公報に記載されているようなパーフルオロゴムの加硫物、PTFE(ポリテトラフルオロエチレンの略)微粉末を添加した液状パーフルオロゴムの加硫物や、特開2001-325972号公報に記載のイソブチレン系共重合体などが好適に用いられる。

シール材18a、18b以外の各部については、図1に示す第1の例のセパレータ20と同じで、ここでは説明を省く。

尚、第4の例のセパレータ20aの作製方法も、基本的には第1の例の場合と同様で、個別に作製されたセパレータ部材連結体10と、枠連結体12、13とを、位置合せしながら圧着して作製する方法が挙げられる。

勿論、図4に示す第2の例や図5に示す第3の例のセパレータにおいて、シール材を配設した構造のものも本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の1つとして挙げられる。

次いで、本発明の燃料電池の実施の形態の第1の例を、図6に基づいて説明する。

尚、便宜上、電気的接続は、図6(a)、図6(b)では省き、図6(c)のみに示してある。

本例は、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池であっ

て、図1に示す第1の例の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ(図6(a)の21、22に相当)を、燃料供給側、酸素供給側の両方に用いたものである。そして、セパレータ部材連結体10A,10Bの表裏に配設された枠連結体の一方の各枠部(12A,12B)の開口に、燃料電池の膜電極複合体(MEA)30を嵌め込み配設したものである。

勿論、本例においては、図1に示すセパレータ20のセパレータ部材連結体1 0のつなぎ部A7、A8箇所は除去し、各単位セル毎に分離されている。

したがって、この場合、セパレータ21は、枠連結体12A、13Aを用いてセパレータ部材連結体を各セル毎に分離した状態のもの(セパレータ群とも言う)10Aを挟持し、セパレータ22は、枠連結体12B、13Bでセパレータ部材連結体を各セル毎に分離した状態のもの(セパレータ群とも言う)10Bを挟持することとなる。

セパレータ部材連結体を各セル毎に分離した状態のもの(セパレータ群とも言う) 10A、10B間の枠連結体12A、12Bを合わせた厚みは、略膜電極複合体 (MEA) 30と同じ厚みであり、MEAを平面状に設けることができる。

尚、本例において、図2(b)のセル間分離用貫通孔部16領域に相当する単位セル間を分離する部分C0では、枠連結体のみが密着された状態で存在している。

尚、単位セルの数を2つとしているが、本例と同様のものとして、セパレータ 部材(図1の10a、10bに相当)を増やし、本例と同様の構成で、単位セル を3つ以上設けた燃料電池が挙げられる。

ここでの、枠連結体12A、13Aおよび、枠連結体12B、13Bは、それぞれ、セパレータ部材の接続部以外で、各単位セルを絶縁しているだけでなく、同時に、MEAを挟持した状態で、セル内部の燃料、水分などが、燃料供給面以外からセル外部に出る事を防ぐ、シール材としての役割も果たす。

セパレータ21、22を密着、保持する方法としては、以下の方法が挙げられる。第1に、各部材間に絶縁性の接着剤を用いる方法がある。第2に、枠連結体12A,12Bの一部ないし全部をプリプレグのような半硬化状態の樹脂とし、各部材を重ね合わせてから、一括して熱圧着する方法がある。また、第3に、各

<u>٧</u> \_

層を積層してから、図7に示すように筐体50などで外部から機械的に保持する 方法が挙げられる。

第1の方法は、例えばエポキシ樹脂などの接着剤を塗布し、各部材を重ねあわせた状態で、接着剤を硬化させるものである。この場合に用いられる接着剤は、その製造のプロセスにおいて他の部材に影響を及ぼさず、かつ、燃料電池としての動作条件に対する耐性が優れたものであれば、特に限定はされない。また、接着剤でなくプリント基板で用いられる、プリプレグのような半硬化状態の樹脂シートを挟み込んでも良い。

第2の方法は、枠連結体12A、12Bの一部ないし全部をプリプレグのような半硬化状態の樹脂シートに置きかえることで、より工程を簡略化する事が可能である。すなわち、各部材を重ねあわせた状態で熱圧着により、燃料電池セルを固定化するものである。この場合、用いられる半硬化状態の樹脂シートは、その製造のプロセスにおいて他の部材に影響を及ぼさず、かつ、燃料電池としての動作条件に対する耐性が優れたものであれば、特に限定はされない。

第3の方法は、最も簡便な方法であり、燃料電池セルを固定、保持するための 筐体50などの構造体を使用して電池本体を組み立てれば良い。

本例の燃料電池の製造方法の1例を、簡単に説明する。

先ず、図1に示すセパレータ20と同じもの2つについて、それぞれ、そのセパレータ部材連結体10のつなぎ部A7、A8(図2(b)参照)を除去し単位セル毎に分離したセパレータ21、22を用意する。

また、膜電極複合体(MEA)30を用意する。

次いで、セパレータ21の枠連結体12Aの開口に膜電極複合体(MEA)30を載置する。次に、セパレータ22の枠連結体12Bが膜電極複合体(MEA)30上に位置するように、セパレータ22をセパレータ21上に重ね圧着する。これにより、セパレータ21とセパレータ22とで膜電極複合体(MEA)30を嵌め込むように挟持することができる。

セパレータ21、22において、膜電極複合体(MEA)30を保持する方法 としては、先に述べた第1の方法~第3の方法が採られる。

次いで、単位セル間を直列接続とするためのセパレータ部材の電気的接続を行

Ţ

ない、燃料電池を作製する。

本例の燃料電池は、配線基板の製造技術として知られている、導電性ペーストを用いた充填ビア形成法を用いて、セパレータ部材の電気的接続を行ったもので、図6(c)に示すように、その接続がなされている。

尚、本例では、予め、つなぎ部A7、A8を除去して、単位セル毎に分離されたセパレータ21、22を用いた。しかし、図1に示す、つなぎ部A7、A8を除去していない枠連結体10を有するセパレータ20を用いる場合には、最終的に枠連結体10の単位セルごとのつなぎ部A7、A8を切断すればよく、これにより、本例の高分子電解質型燃料電池を得ることができる。

ここで、本例の燃料電池における単位セル間のセパレータ部材の電気的接続を 図8に基づいて説明する。

尚、図8は、図6におけるC3-C4-C5-C6-C7における工程断面を 示している。

膜電極複合体 (MEA) 30挟むようにして、セパレータ21とセパレータ22とを重ね圧着して、膜電極複合体 (MEA) 30をその間に嵌め込む (図8(a))。その後、C5-C6間に貫通孔45を、また、枠連結体13A、13Bには、セパレータ部材との接続用の孔部46を、ドリルあるいはレーザ照射にて形成する(図8(b))。

次いで、ディスペンサあるいはスクリーン印刷等の印刷法により、導電性ペーストを貫通孔45および孔部46に充填して、充填ビア41、42を形成する(図8(c))。その後、ディスペンサあるいは印刷法により、更に導電性ペーストにて配線43を形成する(図8(d))。

例えば、貫通孔45への充填の場合、スクリーン印刷等を用いて導電性ペーストを塗布し、孔加工を施した基板反対側に吸引器具を配置し減圧することにより、 導電性ペーストを貫通孔45に充填させることができる。

この後、必要に応じ、乾燥、焼成等の処理を行ない、セパレータ部材間の電気 接続を完了する。

導電性ペーストとしては、銀ペースト、銅ペースト、金ペースト、パラジウムペースト、パラジウムー銀ペースト等が挙げられる。

7

本例の燃料電池の第1の変形例としては、単位セル間のセパレータ部材の電気的接続を図9(c)に示すように、バンプ(突起電極とも言う)を用いて行ったものが挙げられる。

尚、図9は、図6におけるC3-C4-C5-C6-C7に相当する位置における工程断面を示している。

以下、この第1の変形例の燃料電池における単位セル間のセパレータ部材の電 気的接続を、図9に基づいて、簡単に説明する。

第1の変形例の場合は、図6に示す実施の形態例の燃料電池の場合とは異なり、ベタ状の板材112をセパレータ部材連結体110の一方の面に設けた第2の例のセパレータ120(図4参照)を、燃料供給側、酸素供給側の両方に用いたものである。この例では、用いるセパレータ121の枠連結体113Aとセパレータ122の枠連結体113Bの開口に、燃料電池の膜電極複合体(MEA)30を嵌め込み配設したものである。

以下、この燃料電池における単位セル間のセパレータ部材の電気的接続を、図9に基づいて、簡単に説明する。

予め、図4に示すセパレータ120と同じもの2つについて、それぞれ、そのセパレータ部材連結体110のつなぎ部A7、A8(図2(b)参照)を除去し、単位セル毎に分離したセパレータ121、122を用意する。

また、膜電極複合体(MEA)30も用意しておく。

そして、膜電極複合体(MEA)30挟むようにして、セパレータ121とセパレータ122とを重ね圧着して、膜電極複合体(MEA)30をその間に嵌め込む。その後、その両面に、導電性のバンプ62、63を形成した銅箔61を用意し(図9(a))、これらを積層する(図9(b))。

これらの部材を重ねあわせて密着、保持する方法は、上述の実施の形態例と同じ方法が適用できる。

バンプ62、63としては、導電性ペーストを複数回印刷することによりバンプ形成したもの、あるいは、ワイヤバンプ、ワイヤバンプを更に導電性ペーストで覆ったもの等が適用できる。

尚、バンプを作製する際、バンプ部を所定の高さにするとともに、その先端を

. 🔻

鋭く尖らせておく。

この後、フォトエッチング法により銅箔61をエッチングして、配線61aを 形成し、セパレータ部材間の電気接続を完了する(図9(c))。

最後に、ベタ状の板材112A、112Bに対し、燃料の供給用の開口、酸素 供給用の開口を形成する。(図示していない)

開口部を形成する方法は、炭酸ガスレーザーによる方法、機械加工による方法 などが挙げられる。

尚、これにより、製造プロセス途中に燃料供給部を外部の環境から保護する必要がなくなり、製造プロセスの自由度が増し、ハンドリングも容易となる。

本例の燃料電池の第2の変形例としては、単位セル間のセパレータ部材の電気的接続を図10(d)に示すように、めっき形成されたスルホールを用いて行ったものが挙げられる。

尚、図10も、図6におけるC3-C4-C5-C6-C7に相当する位置に おける工程断面を示している。

第1の変形例の場合は、図6に示す実施の形態例の燃料電池の場合とは異なり、図5に示すベタ状の板材112と銅箔からなる導電性層130をセパレータ部材連結体110の一方の面に設けた第3の例のセパレータ125(図5参照)を、燃料供給側、酸素供給側の両方に用いたものである。この例では、用いるセパレータ126の枠連結体113Aとセパレータ127の枠連結体113Bの開口に、燃料電池の膜電極複合体(MEA)30を嵌め込み配設したものである。

ベタ状の板材112と銅箔からなる導電性層130との積層基材として、開口 部がない片面銅張りガラスエポキシ基板などが適用できる。

以下、この燃料電池における単位セル間のセパレータ部材の電気的接続を、図 10に基づいて、簡単に説明する。

予め、図5に示すセパレータ125と同じもの2つについて、それぞれ、そのセパレータ部材連結体110のつなぎ部A7、A8(図2(b)参照)を除去し単位セル毎に分離することにより、セパレータ126、127を用意する。

また、膜電極複合体(MEA)30も用意しておく。

そして、膜電極複合体(MEA)30挟むようにして、セパレータ126とセ

パレータ127とを重ね圧着して、膜電極複合体(MEA) 30をその間に嵌め込む。その後、その両面に、銅箔65を積層する(図10(a))。

これらの部材を重ねあわせて密着、保持する方法は、上述の実施の形態例と同じ方法が適用できる。

次いで、接続部を形成する部分に、ドリルあるいはレーザーにより、スルーホール接続部を形成するためのビア42A、及び貫通孔45Aを開ける(図10(b))。

次いで、デスミア処理および触媒付与処理を行なった後、ビア部42A、貫通 孔部45Aの表面部を含む全面に無電解めつきを行ない、貫通孔をめっき層70 で充填し、表裏を導通させる(図10(c))。

無電解めつきとしては、無電解ニッケルめっき、無電解銅めっきなどを適宜行なう。

無電解めつきは、触媒にて活性化処理を行なった後、所定のめっき液にて行なう。通常は銅めっきを行なう。

次いで、表裏面全体にレジスト製版を行ない、レジストから露出しためっき層部分を、塩化第2鉄液等をエッチング液として用い、エッチングにより接続配線43aを形成する。その後、レジスト除去、必要に応じて洗浄処理を行ない、本例の高分子電解質形燃料電池を得る。

尚、ここでは、貫通孔をメッキ層で充填したが、これに限定されるものではない。例えば、貫通孔を大きく形成しておき、めっきによって表裏の導通がとられたときに、貫通孔がまだ表裏で貫通している状態とする、普通のスルーホール接続部としても良い。

次いで、フォトエッチング法により、めっき層70および銅箔65を所定形状 にエッチングして、配線部43aを形成し、セパレー夕間の電気接続を完了する (図10(d))。

最後に、ベタ状の板材112A、112Bに対し、燃料の供給用の開口、酸素供給用の開口を形成する。(図示していない)

開口部を形成する方法は、炭酸ガスレーザーによる方法、機械加工による方法 などが挙げられる。 . •

尚、これにより、製造プロセス途中に燃料供給部を外部の環境から保護する必要がなくなり、製造プロセスの自由度が増し、ハンドリングも容易となる。

次に、本発明の燃料電池の実施の形態の第2の例を、図14に基づいて説明する。

尚、便宜上、電気的接続については省いて図示してある。

第2の例も、単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池である。この例では、図13に示す第4の例の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ21a、22aを、燃料供給側、酸素供給側の両方に用いたものである。そして、第1の例と同様、セパレータ部材連結体10A,10Bの表裏の枠連結体の一方(12A,12B)の開口に、燃料電池の膜電極複合体(MEA)30を嵌め込み配設したものである。

そして、先に述べた、図8に示す充填ビア接続により、単位セル間のセパレー 夕部材を電気的接続している。

この第2の例においても、第1の例の場合と同様、図13に示すセパレータ20aのセパレータ部材連結体10のつなぎ部(図2のA7、A8箇所に相当)は除去し、各単位セル毎に分離されている。

上述のように、本例は、図6に示す第1の例の平面型の高分子電解質型燃料電池において、第1の例のセパレータ20に代え、第4の例のセパレータ20a(図14の21a、22aに相当)を用いた構造である。セパレータ21a、22aの各層間はシール材18bにより、また、セパレータ21a、22aどうしの間はシール材18aにより、それぞれシールされている。このため、シール材を設けない図6に示す第1の例の平面型の高分子電解質型燃料電池の場合に比べ、単位セルの気密性が向上したものとなる。

セパレータ 2 0 a 以外の各部は基本的に第 1 の例の平面型の高分子電解質型燃料電池と同じで、作製方法も基本的には同じである。

また、第2の例の平面型の高分子電解質型燃料電池の変形例としては、単位セル間のセパレータ部材の電気的接続を、先に述べた、図9に示すバンプ接続で行なっているもの、あるいは、図10に示すスルホール接続で行なっているものが挙げられる。

勿論、図4に示す第2の例や図5に示す第3の例のセパレータにおいて、シール材を配設した構造のものを用いた平面型の高分子電解質型燃料電池も本発明の平面型の高分子電解質型燃料電池の1つとして挙げられる。

## 産業上の利用可能性

以上のように、本発明のセパレータは平面型の高分子電解質型燃料電池に使用可能であり、本発明のセパレータを用いた平面型の高分子電解質型燃料電池は、軽量化と強度の向上、さらに、各単位セルの気密性向上を実現できる。

## 請求の範囲

1. 単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池用の、燃料供給側ないし酸素供給側のセパレータにおいて、

金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するようにして複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結してなるセパレータ部材連結体と、

各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の開口を有し、且つ 単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結してなる、絶縁材からな る枠連結体と、

を有し、該枠連結体は1対として前記セパレータ部材連結体を、その両面から 挟持するものであり、且つ、前記セパレータ部材連結体の表裏の枠連結体の一方 の各枠部は、その開口に燃料電池の膜電極複合体(MEA)を嵌め込み可能であ ることを特徴とする平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ。

- 2. 請求項1の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前配枠 連結体に溝を設け、該溝に配設されたOリングをシール材として有する。
- 3. 請求項1の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータを構成するセパレータ部材連結体と枠連結体との間、および、枠連結体の表面に、ディスペンサーにより配設されたシール材を有する。
- 4. 請求項1の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータを構成するセパレータ部材連結体と枠連結体との間、および、枠連結体の表面に、印刷により配設されたシール材を有する。
- 5. 請求項1の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータ部材は、その一方の面に前記貫通孔に連通する溝部を有する。

- 6. 請求項5の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記 講部は、ハーフエッチングにて形成されたものである。
- 7. 請求項1の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータ部材は、該表面の導電性を損なわない耐食性金属層を有する。
- 8. 請求項1の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータ部材は、少なくとも、その燃料電池の電解質側となる表面に、耐食性(耐弱酸性)、かつ、電気導電性の樹脂皮膜を有する。
- 9. 請求項8の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記樹脂皮膜は、電着、電解重合、あるいはその両方の組み合わせにより、形成された樹脂皮膜である。
- 10. 単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池用の、燃料供給側ないし酸素供給側のセパレータにおいて、

金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するようにして複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結してなるセパレータ部材連結体と、

各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の開口を有し、且つ 単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結してなる、絶縁材からな る枠連結体と、

絶縁材からなるベタ状の板材、あるいは、絶縁材からなるベタ状の板材上に導 電性層を積層した積層基材と、

を有し、前記枠連結体と、ベタ状の板材あるいは積層基材とは、1対として前記セパレータ部材連結体を、その両面から挟持するものであり、且つ、前記枠連結体の各枠部は、その開口に燃料電池の膜電極複合体(MEA)を嵌め込み可能であることを特徴とする平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ。

- 1 1. 請求項10の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、 前記枠連結体および前記ベタ状の板材に溝を設け、該溝に配設されたOリングを シール材として有する。
- 12. 請求項10の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータを構成するセパレータ部材連結体と枠連結体との間、セパレータ部材連結体とベタ状の板材との間、枠連結体の表面、および、ベタ状の板材の表面に、ディスペンサーにより配設されたシール材を有する。
- 13. 請求項10の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータを構成するセパレータ部材連結体と枠連結体との間、セパレータ部材連結体とベタ状の板材との間、枠連結体の表面、および、ベタ状の板材の表面に、印刷により配設されたシール材を有する。
- 14. 請求項10の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータ部材は、その一方の面に前記貫通孔に連通する溝部を有する。
- 15. 請求項14の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記溝部は、ハーフエッチングにて形成されたものである。
- 16. 請求項10の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータ部材は、該表面の導電性を損なわない耐食性金属層を有する。
- 17. 請求項10の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、セパレータ部材は、少なくとも、その燃料電池の電解質側となる表面に、耐食性(耐弱酸性)、かつ、電気導電性の樹脂皮膜を有する。
  - 18. 請求項17の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、

前記樹脂皮膜は、電着、電解重合、あるいはその両方の組み合わせにより、形成された樹脂皮膜である。

19. 単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池において、

セパレータ部材連結体と、該セパレータ部材連結体を両面から挟持するように 配設された1対の枠連結体と、を備える1組のセパレータが、燃料電池の膜電極 複合体(MEA)を介して対向し、かつ、前記枠連結体の対向する面の開口に前 記膜電極複合体(MEA)が嵌め込まれており、

前記セパレータ部材連結体は、金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を 供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するように して複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結したものであり、

前記枠連結体は、各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の 前記開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結し た絶縁材からなるものであることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

- 20. 請求項19の高分子電解質型燃料電池において、各単位セルを同じ向きにして平面状に複数側配設し、且つ、所定の隣接する単位セル間を電気的に直列に接続して、前記複数の単位セルを直列に接続した。
- 2 1. 請求項19の高分子電解質型燃料電池において、前記所定の隣接 する単位セル間に位置する枠連結体に、スルーホール接続部、充填ビア接続部、 バンプ接続部の少なくとも1つを備え、これら接続部を介して所定の隣接する単 位セル間の電気的な接続がなされている。
- 22. 単位セルを平面的に配列した平面型の高分子電解質型燃料電池において、

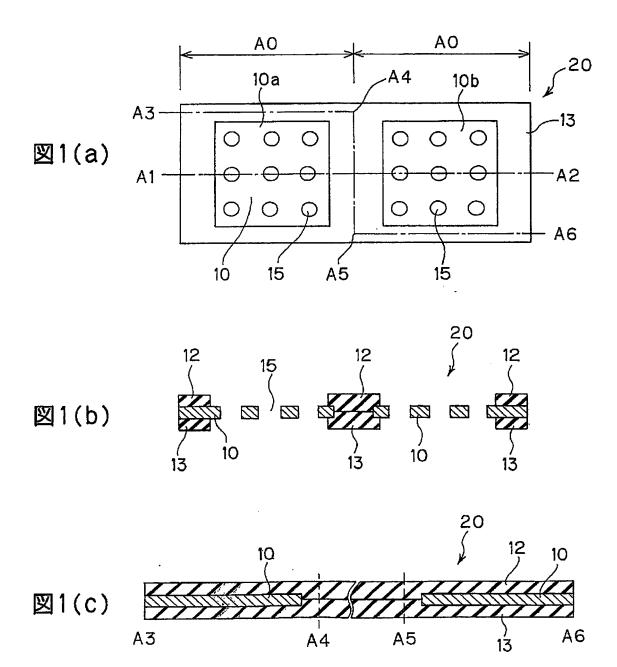
セパレータ部材連結体と、該セパレータ部材連結体を挟持するように一方の面に配設された枠連結体と、他方の面に配設された絶縁材からなるベタ状の板材、

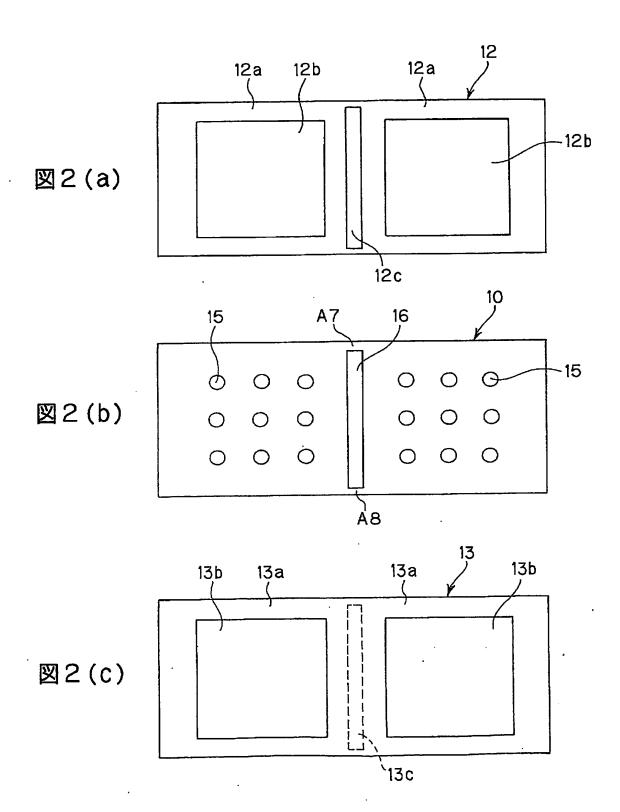
あるいは、絶縁材からなるベタ状の板材上に導電性層を積層した積層基材と、を 備える1組のセパレータが、燃料電池の膜電極複合体 (MEA)を介して対向し、 かつ、前記枠連結体の開口に前記膜電極複合体 (MEA) が嵌め込まれており、

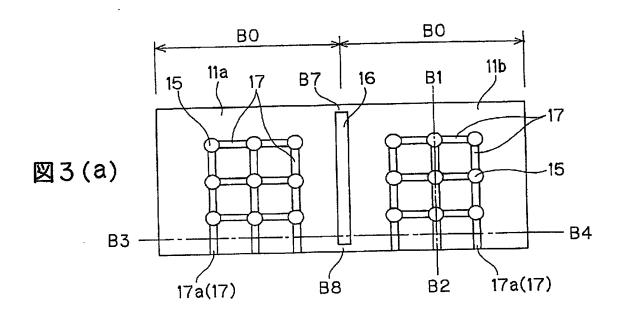
前記セパレータ部材連結体は、金属板を基体とし、燃料電池の電解質に燃料を 供給するための貫通孔を単位セルに対応させて前記基体の表面に直交するように して複数配列して設けたセパレータ部材を、複数個一体的に連結したものであり、

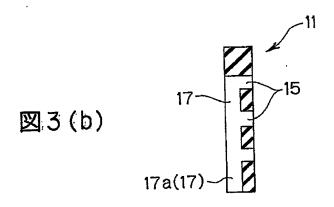
前記枠連結体は、各セパレータ部材に対応した燃料供給用ないし酸素供給用の 前記開口を有し、且つ単位セル間を絶縁するための枠部を複数個一体的に連結し た絶縁材からなるものであることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

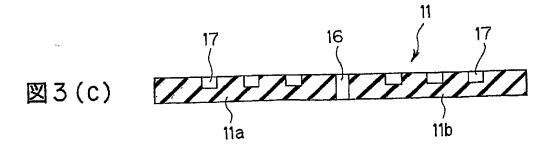
- 23. 請求項22の高分子電解質型燃料電池において、各単位セルを同じ向きにして平面状に複数側配設し、且つ、所定の隣接する単位セル間を電気的に直列に接続して、前記複数の単位セルを直列に接続した。
- 24. 請求項22の高分子電解質型燃料電池において、前記所定の隣接する単位セル間に位置する枠連結体、および、ベタ状の板材あるいは積層基材に、スルーホール接続部、充填ビア接続部、バンプ接続部の少なくとも1つを備え、これら接続部を介して所定の隣接する単位セル間の電気的な接続がなされている。











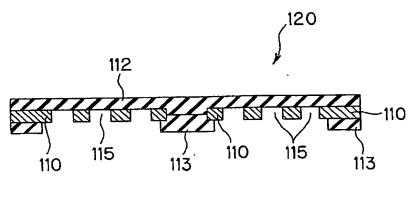
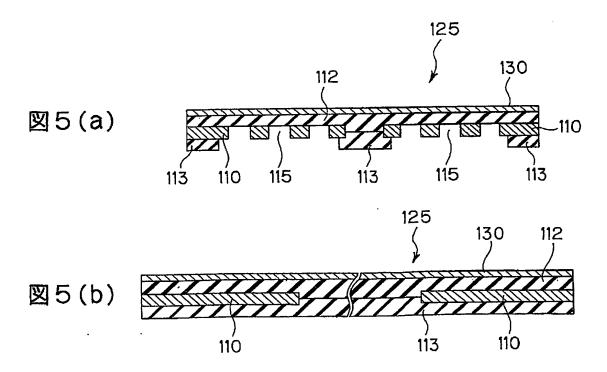
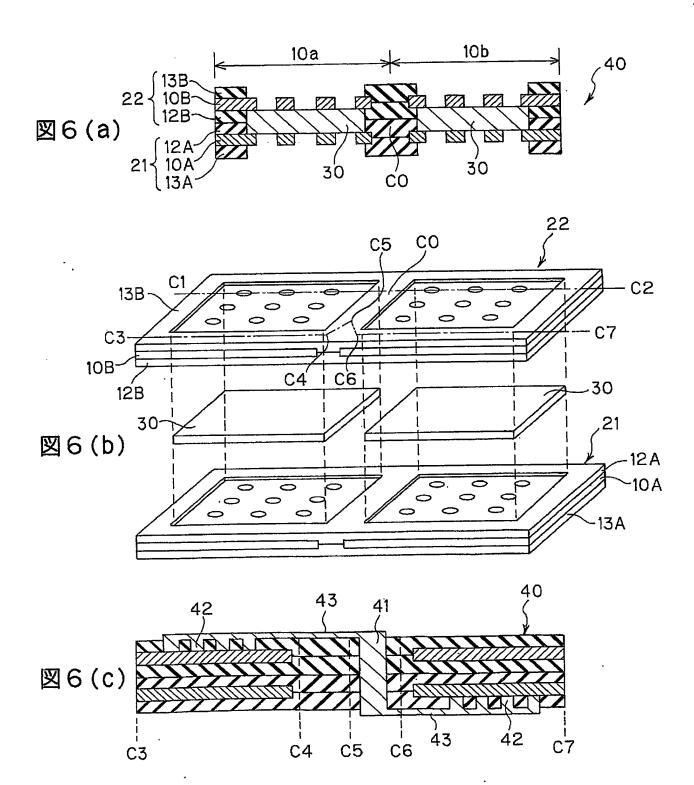


図 4





6/11

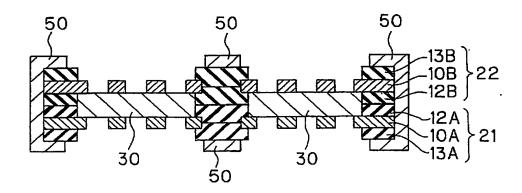
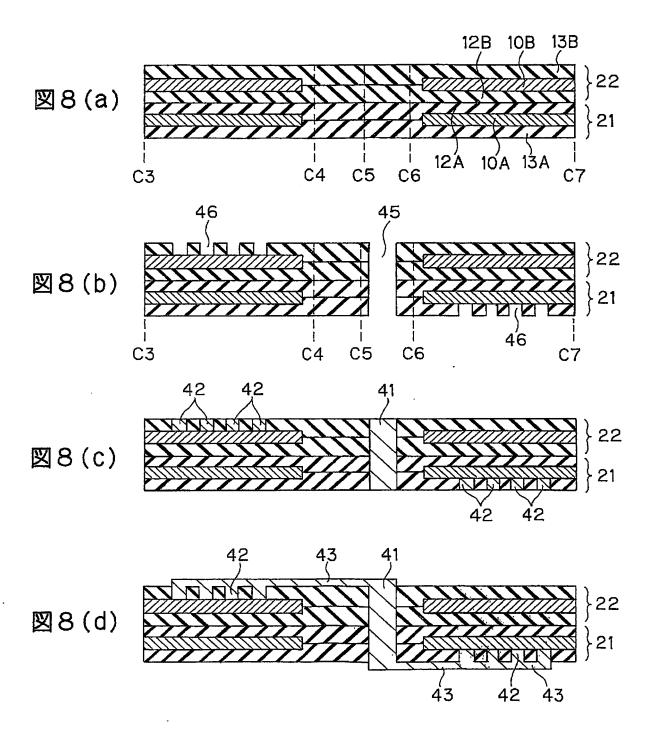
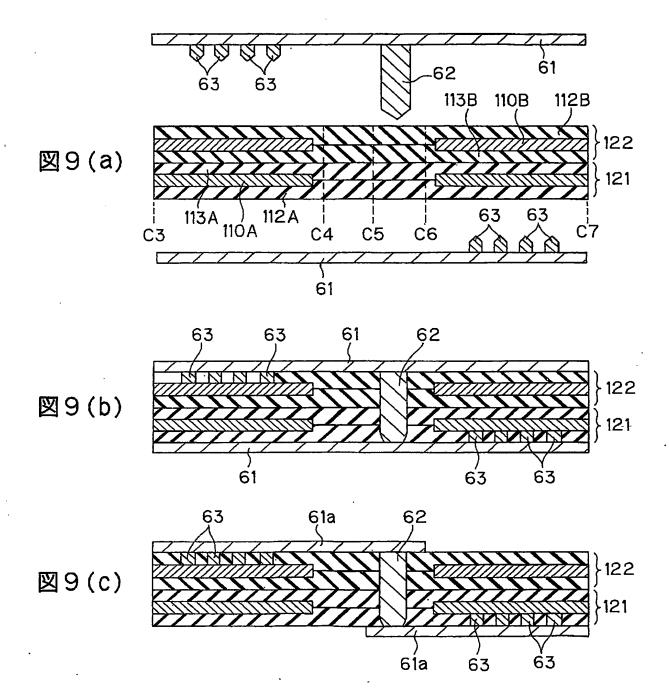
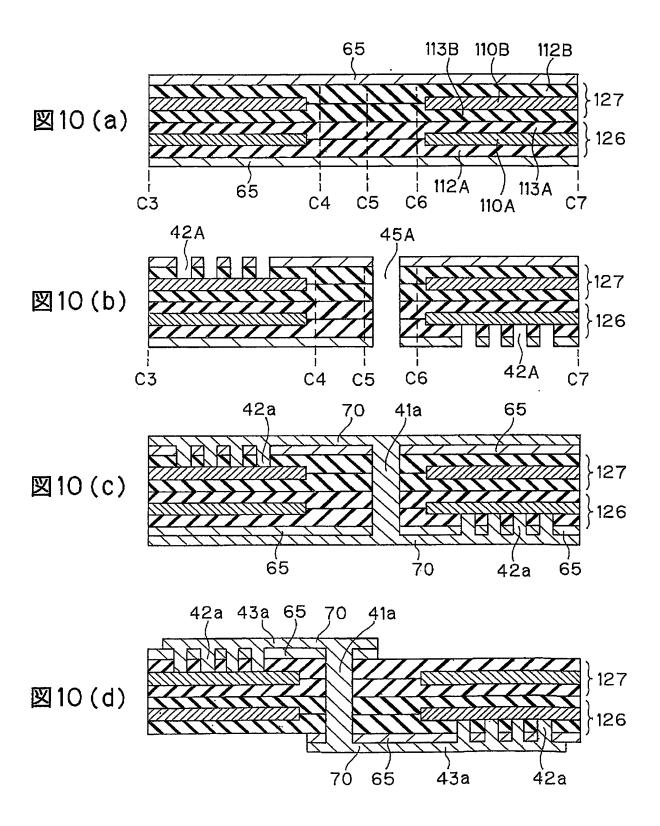


図 7







WO 03/098726 PCT/JP03/05936

10/11

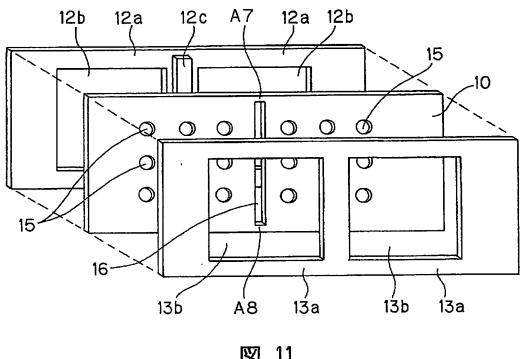
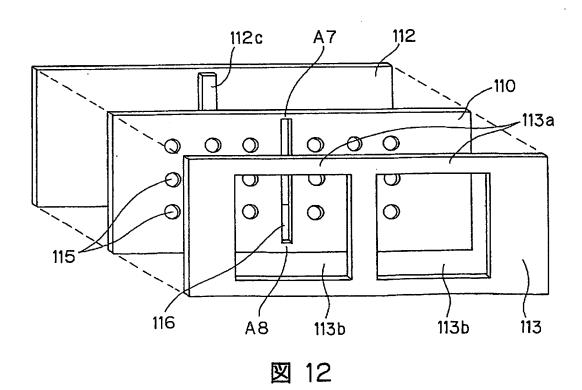
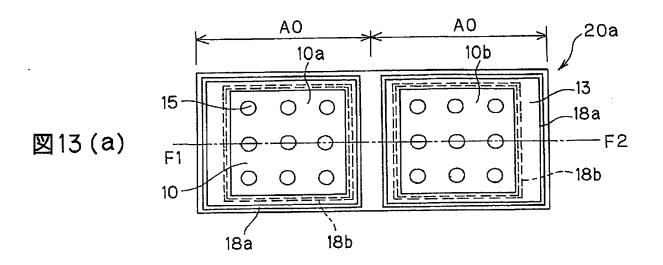
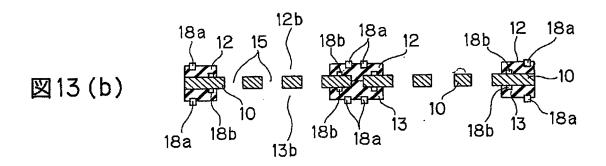


図 11



11/11





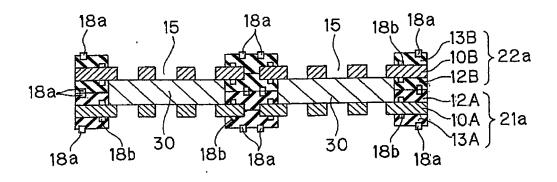


図 14

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP03/05936

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10						
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC						
B. FIELD	S SEARCHED					
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>7</sup> H01M8/02, H01M8/10						
i e	tion searched other than minimum documentation to th					
Koka:	uyo Shinan Koho 1922-1996 i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003			
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JOIS						
C DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
		:	Relevant to claim No.			
Category*	Citation of document, with indication, where a					
A	US 5543241 A (Sanyo Electric 06 August, 1996 (06.08.96), & JP 7-29580 A	Co., Ltd.),	1-24			
A	JP 6-338333 A (Mitsubishi He 06 December, 1994 (06.12.94), (Family: none)		1-24			
A	JP 8-171925 A (Mitsubishi El 02 July, 1996 (02.07.96), (Family: none)	ectric Corp.),	1-24			
A	JP 8-273696 A (Mazda Motor Corp.), 18 October, 1996 (18.10.96), (Family: none)		1-24			
		·				
× Furthe	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.				
* Special categories of cited documents:  document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" earlier document but published on or after the international filing date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art				
"P" document published prior to the international filing date but later "&" document member of the same patent family than the priority date claimed						
Date of the actual completion of the international search  12 August, 2003 (12.08.03)  Date of mailing of the international search report  26 August, 2003 (26.08.03)						
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer				
Facsimile No.		Telephone No.				

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP03/05936

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
A	JP 2001-176520 A (Araco Corp.), 29 June, 2001 (29.06.01), (Family: none)	1-24	
A	Yuichi KAMO, "Chokusetsu Methanol-kei Nenryo Denchi", Dai 41 Kai Denki Kagaku Seminar Text, Denki Kagaku Kai Kansai Shibu, 13 July, 2001 (13.07.01), pages 29 to 38	1-24	
E,A	JP 2003-203647 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 18 July, 2003 (18.07.03), (Family: none)	1-24	
i			
	·		
		-	

. Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl7 H01M 8/02, H01M 8/10

#### B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M 8/02, H01M 8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2003年

日本国登録実用新案公報

1994-2003年

日本国実用新案登録公報

1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS

C. 関連すると認められる文献				
引用文献の		関連する		
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号		
A	US 5543241 A(Sanyo Electric Co., Ltd.) 1996. 08.06 & JP 7-2958	1~24		
}				
A	JP 6-338333 A(三菱重工業株式会社)1994.12.06(ファミリーなし)	1 ~24		
A	JP 8-171925 A(三菱電機株式会社)1996.07.02(ファミリーなし)	1~24		
A	JP 8-273696 A(マツダ株式会社)1996.10.18(ファミリーなし)	1 ~24		
Α .	JP 2001-176520 A(アラコ株式会社)2001.06.29(ファミリーなし)	1 ~24		

#### 区欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- \* 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12.08.03

国際調査報告の発送日

25,02,03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 特許庁審査官(権限のある職員) 小川 進 4 X 8

X | 8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

国外侧互业口 国外四级 1000				
C (続き)       関連すると認められる文献         引用文献の       関連する				
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇	前所の表示	請求の範囲の番号	
A	加茂友一,直接メタノール形燃料電池,第41回電気化学セキスト,電気化学会関西支部,2001.07.13,p.29-38		1 ~24	
E, A	JP 2003-203647 A(大日本印刷株式会社)2003.07.18(フェレ)	ァミリーな	1 ~24	
	·			
	· .			
			-	